

51

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

Int. Cl.:

C 08 g. 23/02

DEUTSCHES



PATENTAMT

62

Deutsche Kl.:

39 b5, 23/02

Behördeneigenthum

10

11

21

22

43

# Offenlegungsschrift 1905 100

Aktenzeichen: P 19 05 100.4

Anmeldetag: 1. Februar 1969

Offenlegungstag: 6. August 1970

Ausstellungspriorität: —

30

Unionspriorität

32

Datum: —

33

Land: —

31

Aktenzeichen: —

54

Bezeichnung:

Siloxanmodifizierte Harnstoffderivate

61

Zusatz zu: —

62

Ausscheidung aus: —

71

Anmelder:

Farbenfabriken Bayer Aktiengesellschaft, 5090 Leverkusen

Vertreter: —

72

Als Erfinder benannt:

Gölit, Dr. Hans Dietrich; 5000 Köln;  
Degener, Dr. Eberhard; 5090 Leverkusen;  
Oertel, Dr. Günter; 5000 Köln;  
Schmelzer, Dr. Hans-Georg; New Martinsville, W. Va. (V. St. A.);  
Simmler, Dr. Walter; 5074 Odenthal

Benachrichtigung gemäß Art. 7 § 1 Abs. 2 Nr. 1 d. Ges. v. 4. 9. 1967 (BGBl. I S. 960): —

DT 1905100

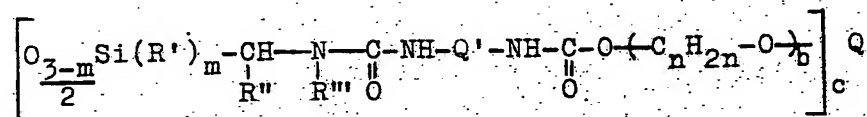
1905100

# FARBENFABRIKEN BAYER AG

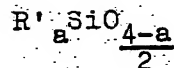
LEVERKUSEN-Bayerwerk, 31. Januar 1969  
 Patent-Abteilung H/By

## Siloxanmodifizierte Harnstoffderivate

Die Erfindung betrifft neue carbofunktionelle Organosiloxan-Verbindungen, die man als carbamatmodifizierte Harnstoffderivate auffassen kann und die aus mindestens einer Struktureinheit der Formel



und weiteren Struktureinheiten, deren jede für sich entweder auch dieser Formel oder bis zu weniger als deren tausendfacher Anzahl der Formel



entspricht, bestehen.

In diesen Formeln, wie auch in sämtlichen nachfolgenden, ist

R' ein gegebenenfalls halogen- oder cyansubstituierter Alkyl-, Cycloalkyl- oder Arylrest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen,

R'' ein Wasserstoffatom oder ein Methyl- oder Phenylrest,

R''' ein Wasserstoffatom oder ein gegebenenfalls halogen- oder cyansubstituierter Alkyl-, Cycloalkyl- oder Arylrest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen,

Q' ein Alkylenrest mit 2 bis 10 Kohlenstoffatomen, ein Cycloalkylen-, Arylalkylen-, Arylen- oder Alkylarylenrest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen oder ein vom Diphenylmethan durch Entzug von zwei Wasserstoffatomen abgeleiteter Arylenrest,

Q ein ein- bis sechswertiger gesättigter aliphatischer Kohlenwasserstoffrest mit bis zu 6 Kohlenstoffatomen,

m = 0, 1 oder 2,

n = 2, 3 oder 4,

a = 0, 1, 2 oder 3,

b = null oder eine der ganzen Zahlen von 1 bis 200,

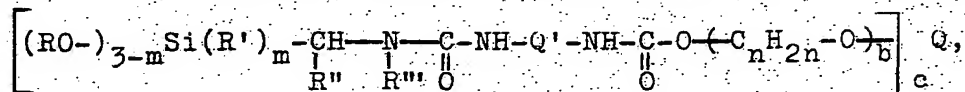
c = Wertigkeitszahl von Q,

wobei diese Reste und Zahlenwerte an jeder Stelle einer Molekel unabhängig voneinander gewählt sind.

Diese Verbindungen eignen sich als Haftung vermittelnde Zwischenschichten auf silicatischen Oberflächen, die mit Kunststoffen überzogen werden, ferner als grenzflächenaktive Agentien und als Vorprodukte zur Herstellung von Organopolysiloxanharzen. Ihre Harnstoff- wie auch ihre Carbamatgruppierung verleihen ihnen eine gewisse Polarität und bewirken damit im Vergleich zu den nicht funktionellen Organosiliciumverbindungen eine Verminderung der gelegentlich nachteiligen Löslichkeit in unpolaren Lösungsmitteln. Darüber hinaus ist ihre Viskosität, verursacht durch die Harnstoffgruppierung, verhältnismäßig hoch, was für manche Organopolysiloxanharze erstrebenswert ist.

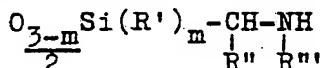
Zu ihrer Herstellung verfährt man erfindungsgemäß in der Weise, daß man

entweder ein silylsubstituiertes Harnstoffderivat der Formel

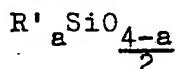


worin, wie auch in den nachfolgenden Formeln, R ein Alkyl- oder Cycloalkylrest mit bis zu 6 Kohlenstoffatomen oder ein Phenylrest ist, oder ein Gemisch solcher Verbindungen oder ein Gemisch dieser Verbindungen mit solchen der Formel  $\text{R}'_a \text{Si}(\text{-OR})_{4-a}$ , beispielsweise Dimethyldiäthoxysilan oder Trimethylmethoxysilan, bei einer Temperatur zwischen 20 und 100°C, vorzugsweise zwischen 50 und 100°C, mit mindestens einem halben Mol Wasser je Grammäquivalent der RO-Reste bis zu deren vollständiger Hydrolyse reagieren läßt

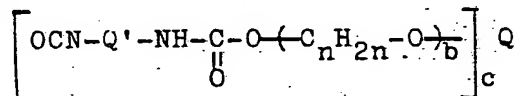
oder ein aminoalkylsubstituiertes Polysiloxan, das aus mindestens einer Struktureinheit der Formel



und weiteren Struktureinheiten, deren jede für sich entweder auch dieser Formel oder bis zu weniger als deren tausendfacher Anzahl der Formel



entspricht, besteht, mit einem isocyanatmodifizierten Carbamidsäureester der Formel

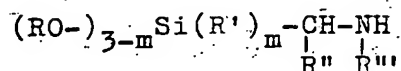


bei einer Temperatur zwischen  $-20$  und  $150^{\circ}C$ , vorzugsweise zwischen  $20$  und  $60^{\circ}C$ , gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umgesetzt.

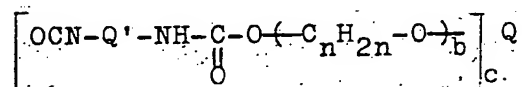
Für die vorangehend an erster Stelle aufgeführte hydrolytische Reaktion verwendet man zur Beschleunigung statt reinen Wassers vorteilhaft  $0,01$ - bis  $1$ -normale wäßrige Salzsäure und davon bis zum Dreifachen der Mindestmenge. Statt der Salzsäure lassen sich auch andere Säuren verwenden, sind aber, falls sie schwerflüchtig sind, vor Isolierung des Reaktionsproduktes mit einer Base, z.B. wäßriger oder alkoholischer Natriumhydroxydlösung, Ammoniak oder einem Amin, zu neutralisieren. Die Hydrolyse kann auch in Gegenwart eines für solche Reaktionen an sich bekannten Lösungsmittels, wie Äthanol, Toluol, Tetrahydrofuran oder Dioxan, durchgeführt werden. Nach Beendigung der Umsetzung und, falls erforderlich, Neutralisation befreit man das Produkt von seinen flüchtigen Beimengungen, wie Alkohol, überschüssigem Wasser, Säure, durch Erhitzen unter vermindertem Druck und von gegebenenfalls bei der Neutralisation ausgeschiedenem Salz durch Filtrieren oder Zentrifugieren.

Die der Hydrolyse zu unterwerfenden silylsubstituierten Harnstoffderivate erhält man nach einem an anderer Stelle beschriebenen

Verfahren in der Weise, daß man ein Aminoalkylsilanderivat der Formel

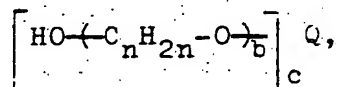


mit einem isocyanatmodifizierten Carbamidsäureester der Formel



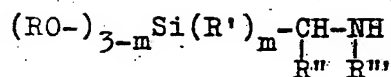
bei einer Temperatur zwischen  $-20$  und  $150^\circ C$ , gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umgesetzt.

Diese Umsetzung verläuft im allgemeinen exotherm; nötigenfalls ist ihr Verlauf durch Kühlung zu mäßigen und bei Nachlassen durch Erwärmen beschleunigt zu Ende zu führen. Als Verdünnungsmittel eignen sich sowohl inerte Lösungsmittel, wie Cyclohexan oder Toluol, als auch alkoholische Hydroxylverbindungen, einschließlich höhermolekularer, und Gemische dieser Arten. Die Hydroxylverbindungen können zum Verdünnen deshalb verwendet werden, weil Isocyanate bekanntlich mit Aminen wesentlich schneller reagieren als mit Alkoholen. Hat man als Verdünnungsmittel eine nichtflüchtige, höhermolekulare Hydroxylverbindungen gewählt, insbesondere beispielsweise einen Polyalkylenglykolmonoalkyläther der Formel

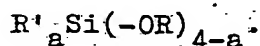


so ist es oft vorteilhaft, diesen Polyäther im Reaktionsprodukt zu belassen. Falls man dagegen ein flüchtiges Lösungsmittel zum Verdünnen verwendet hat, so entfernt man es in der Regel aus dem Umsetzungsprodukt durch Destillation, in einigen Fällen mit Vorteil in einem Dünnschichtverdampfer.

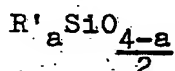
Für die an zweiter Stelle angegebene Ausführung des Herstellungsverfahrens verwendet man aminoalkylsubstituierte Polysiloxane, wie sie nach bekannten Methoden erhältlich sind, beispielsweise durch Hydrolyse und Kondensation von entsprechenden Alkoxysilanen der Formel



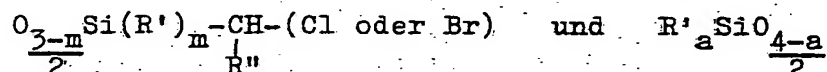
oder von Gemischen dieser Alkoxysilane und solcher der Formel



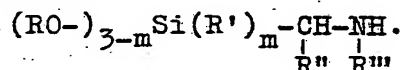
In den Fällen, wo von je hundert Struktureinheiten des Verfahrensproduktes eine Anzahl von 70 oder mehr solche der Formel



sein sollen, empfiehlt sich noch die Methode, bei der halogenalkylsubstituierte Polysiloxane aus Struktureinheiten der Formeln

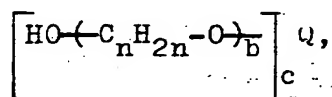


mit einem Amin der Formel  $R'''NH_2$  zu den entsprechenden aminoalkylsubstituierten Polysiloxanen umgesetzt werden. In analoger Weise erhält man bekanntlich auch die vorangehend erwähnten Aminoalkylsilanderivate der Formel



Mit Vorteil wählt man dazu in all diesen Fällen primäre Amine mit Siedepunkten oberhalb  $40^\circ C$ , wie Cyclohexylamin oder Isobutylamin, die vorzugsweise in fünf- bis zehnfachem Überschuß angewendet werden und dann als Komponente des zu gewinnenden Reaktionsproduktes und zugleich als Säurebinder und als Verdünnungsmittel dienen. Die Reaktion läßt man dann bei einer Temperatur zwischen  $20$  und  $150^\circ C$ , vorzugsweise zwischen  $50$  und  $120^\circ C$ , ablaufen und erhält nach Abfiltrieren des ausgefallenen Ammoniumhalogenids und destillativer Entfernung überschüssigen Amins und sonstiger leichtflüchtiger Anteile aus dem Filtrat als Rückstand die Aminoalkylsiliciumverbindungen.

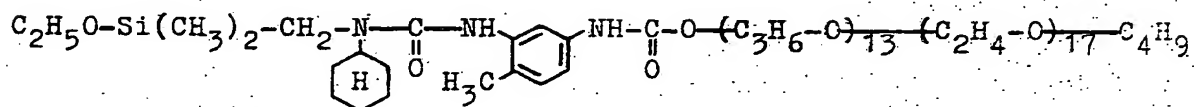
Die bei den vorangehend beschriebenen verschiedenen Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens zu verwendenden isocyanatmodifizierten Carbamidsäureester erhält man nach bekannten Verfahren durch Umsetzung von Diisocyanaten, z.B. Toluylendiisocyanat (2,4) oder Hexamethylendiisocyanat, mit Hydroxylverbindungen der Formel



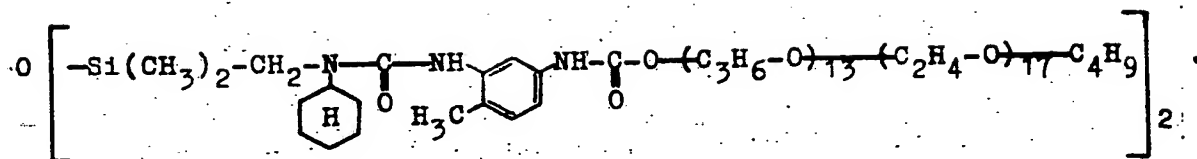
wobei man vorzugsweise das Diisocyanat in einem erheblichen Überschuß, so daß die Zahl der OCN-Gruppen im anfänglichen Reaktionsgemisch das Vier- bis Sechsfache der Zahl der OH-Gruppen beträgt, anwendet und das am Ende der Reaktion übriggebliebene Diisocyanat durch Destillation entfernt, auch hier vorteilhafterweise in einem Dünnschichtverdampfer.

#### Beispiel 1

Zu 80 g (0,044 Mol) eines silylsubstituierten Harnstoffderivats der Formel

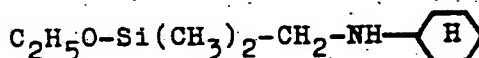


gibt man 3 cm<sup>3</sup> normaler wäßriger Salzsäure und erhitzt dieses Gemisch zur Hydrolyse 4 Stunden lang auf 100°C. Danach entfernt man bei derselben Temperatur unter Druckminderung auf 1 Torr die leichtflüchtigen Anteile und erhält als Rückstand ein klares, in Wasser lösliches Öl von einer Zusammensetzung entsprechend der Formel



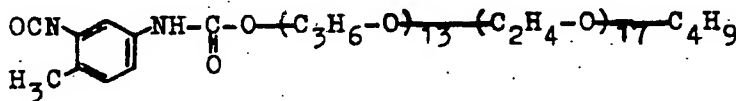
Das für die hydrolytische Reaktion gemäß diesem Beispiel zu verwendende silylsubstituierte Harnstoffderivat läßt sich folgendermaßen herstellen:

- a) 2376 g (24 Mol) Cyclohexylamin wärmt man auf 60°C vor und läßt dazu unter Rühren 748 g (4 Mol) Dimethyl-(brommethyl)-äthoxysilan tropfen; währenddessen hält man die Reaktionstemperatur zwischen 70 und 80°C. Danach erhitzt man das Reaktionsgemisch noch 2 Stunden lang auf 100°C und filtriert das ausgefallene Aminsatz nach Erkalten ab. Durch fraktionierte Destillation des Filtrats erhält man bei 15 Torr zwischen 110 und 115°C das N-Cyclohexyl-(aminomethyl)-dimethyläthoxysilan der Formel



mit dem Brechungsindex  $n_D^{20} = 1,4510$ .

- b) Von einem wasserfreien Polyalkylenglykolmonobutyläther, der in bekannter Weise durch Oxalkylierung von je 1 Mol n-Butanol zuerst mit 17 Mol Äthylenoxyd und weiterhin mit 13 Mol Propylenoxyd hergestellt ist und dessen Molgewicht im Mittel 1550 g beträgt, mischt man 3000 g bei 20 bis 25°C mit 1740 g (10 Mol) Toluylendiisocyanat-(2,4) und erhitzt das Gemisch 5 Stunden lang auf 70°C. Dann befreit man das Reaktionsprodukt von dem überschüssigen Toluylendiisocyanat durch nötigenfalls wiederholte Dünnschichtdestillation bei 0,1 bis 0,2 Torr und 150°C. Als Rückstand erhält man ohne nennenswerten Ausbeuteverlust ein hellgelbes Öl, dessen Zusammensetzung der Formel



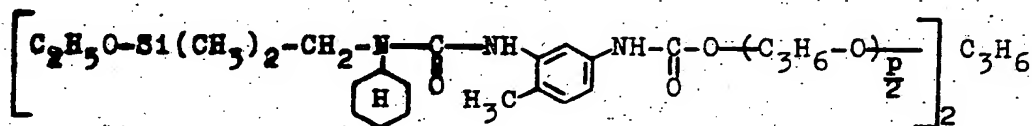


entspricht. Sein Gehalt an OCN-Gruppen beträgt 2,62 Gewichtsprozent, sein Molgewicht im Mittel demnach 1605 g.

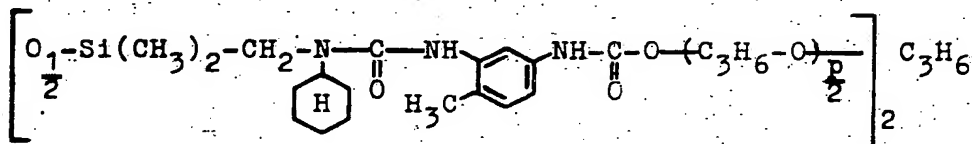
161 g (0,1 Mol) dieses isocyanatmodifizierten Carbamidsäureesters mischt man mit 21,5 g (0,1 Mol) des unter a) beschriebenen N-Cyclohexyl-(aminomethyl)-dimethyläthoxysilans und rührt das Gemisch 20 Stunden lang, wobei die Temperatur vorübergehend bis auf 45°C ansteigt. Das am Ende der Reaktion vorliegende Produkt ist ein hellgelbes, klares, viskoses Öl, das in Wasser löslich ist, von einer Zusammensetzung entsprechend der am Anfang des Beispiels angegebenen Formel.

### Beispiel 2

Zu 133,5 g (0,05 Mol) eines silylsubstituierten Harnstoffderivats der Formel



mit  $p$  im Mittel = 28,4 gibt man 10 cm<sup>3</sup> Wasser und verrührt das Gemisch 2 Stunden lang zur Vollendung der Hydrolysereaktion. Danach entfernt man leichtflüchtige Anteile durch Erhitzen auf maximal 80°C bei 0,5 Torr und erhält als Produkt der Siloxan-kondensation einen klaren, hochviskosen Rückstand, zusammengesetzt aus Struktureinheiten, die im Mittel der Formel



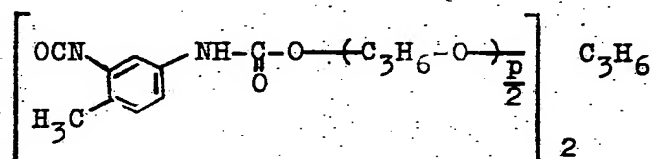
entsprechen.

Das gemäß diesem Beispiel zu verwendende silylsubstituierte Harnstoffderivat kann man auf folgendem Wege erhalten:

Le A 12 041

009832/1899

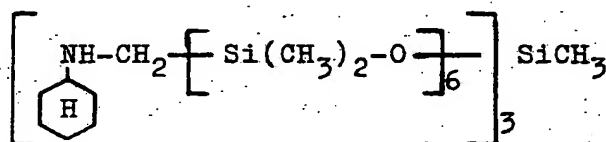
Von einem Polypropylenglykol, das in bekannter Weise durch Oxalkylierung von je 1 Mol 1,2-Dihydroxypropan mit 28,4 Mol Propylenoxyd hergestellt ist und dessen Molgewicht im Mittel 2000 g beträgt, mischt man 1000 g mit 522 g (3 Mol) Toluylen-diisocyanat-(2,4) und erhitzt das Gemisch 6 Stunden lang auf 70°C. Dann befreit man das Reaktionsgemisch in einem Dünnschichtverdampfer bei 0,2 Torr und 150°C von überschüssigem Toluylendiisocyanat. Der Rückstand ist entsprechend der Formel



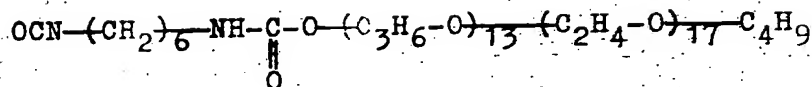
mit  $p$  im Mittel = 28,4 zusammengesetzt. Sein Gehalt an OCN-Gruppen beträgt 3,75 Gewichtsprozent, sein Äquivalentgewicht somit 1120 g. 112 g (0,1 Grammäquivalent) dieses isocyanatmodifizierten Carbamidsäureesters mischt man mit 21,5 g (0,1 Mol) des im Anschluß an Beispiel 1 unter a) beschriebenen N-Cyclohexyl-(aminomethyl)-dimethyläthoxysilans, wobei die Temperatur auf 40°C ansteigt, und verrührt das Gemisch eine Stunde lang zur Vollendung der Additionsreaktion. Das dadurch gebildete Harnstoffderivat kann unmittelbar der im Beispiel beschriebenen Hydrolyse und Kondensation unterworfen werden.

### Beispiel 3

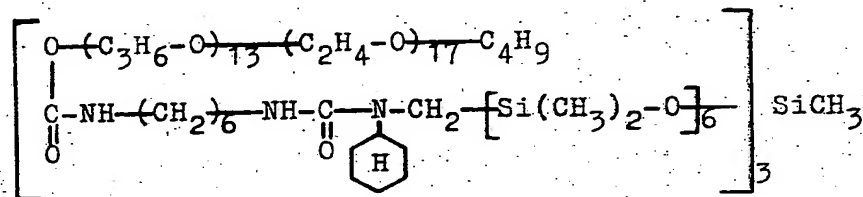
In 150 cm<sup>3</sup> wasserfreien Toluols löst man 77,3 g (0,1 Grammäquivalent) eines aminoalkylsubstituierten Polysiloxans der Formel



und gibt zu dieser Lösung unter Rühren im Laufe von ungefähr einer Stunde tropfenweise eine Lösung von 158,5 g (0,1 Mol) eines isocyanatmodifizierten Carbamidsäureesters der Formel



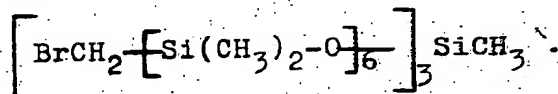
in 150 cm<sup>3</sup> wasserfreien Toluols. Man rührt das Reaktionsgemisch weitere 12 Stunden lang bei Raumtemperatur, dann destilliert man daraus das Lösungsmittel unter vermindertem Druck ab. Als Rückstand verbleibt ein in kaltem Wasser gut lösliches siloxan-modifiziertes Harnstoffderivat, dessen Viskosität ungefähr 20 000 cP bei 25°C beträgt und dessen Zusammensetzung der Formel



entspricht.

Das für diese Umsetzung zu verwendende aminoalkylsubstituierte Polysiloxan kann auf folgende Weise hergestellt werden:

Ein Gemisch von 99 g (0,6 Mol) Methyltrichlorsilan, 1548 g (12 Mol) Dimethyldichlorsilan und 375 g (2 Mol) Dimethyl-(brommethyl)-chlorsilan läßt man zur Hydrolyse und Siloxankondensation im Laufe einer Stunde in 4 Liter Wasser tropfen, trennt die dabei gebildete Polysiloxanphase nach Erkalten ab und vermischt sie dann mit 30 g Wasserstoffmontmorillonit als Äquilibrierungskatalysator. Dieses Gemisch erhitzt man unter einem mit Wasserabscheider versehenen Rückflußkühler auf 150°C und rührt es bei dieser Temperatur unter gleichzeitigem Einleiten von Stickstoff, so lange, bis in dem Abscheider kein Wasser mehr kondensiert. Danach setzt man das Erhitzen bei 150°C noch 5 Stunden lang fort; nach Erkalten des Reaktionsgemisches filtriert man es. Als Filtrat erhält man ein 12,3 Gewichtsprozent Brom in BrCH<sub>2</sub>-Gruppen enthaltendes Polysiloxan der Formel



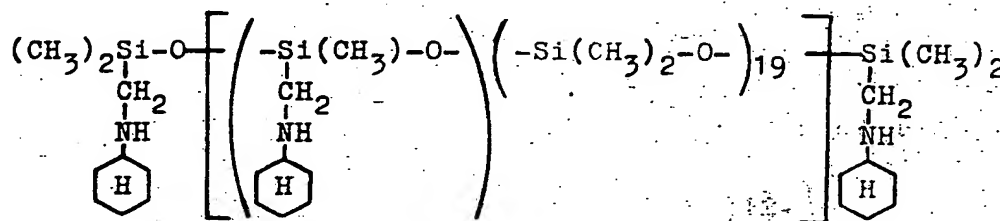
500 g davon, 0,77 Grammatom Br enthaltend, mischt man mit 410 g (4,15 Mol) Cyclohexylamin und erhitzt das Gemisch 3 Stunden lang auf eine Temperatur zwischen 100 und 120°C. Dann kühlt man es auf eine Temperatur zwischen 0 und 5°C, filtriert das ausgefallene Cyclohexylammoniumbromid ab und wäscht mit 100 cm<sup>3</sup> Cyclohexylamin nach. Aus dem Filtrat destilliert man flüchtige Anteile zunächst bei 13 Torr und maximal 120°C ab und entfernt die restlichen flüchtigen Bestandteile aus dem Rückstand in einem Dünnschichtverdampfer bei einem Druck zwischen 0,5 und 1 Torr und 130°C. Dabei weiterhin ausgefallene geringe Mengen Ammonsalz entfernt man durch erneutes Filtrieren. Man erhält ein Filtrat, das neben 0,1 Gewichtsprozent tertiär gebundenen Stickstoffs 1,81 Gewichtsprozent Stickstoff in seinen sekundären Cyclohexylaminomethylgruppen enthält und gemäß dem Beispiel mit dem darin angegebenen isocyanatmodifizierten Carbamidsäureester umzusetzen ist.

Dieser Ester läßt sich folgendermaßen herstellen:

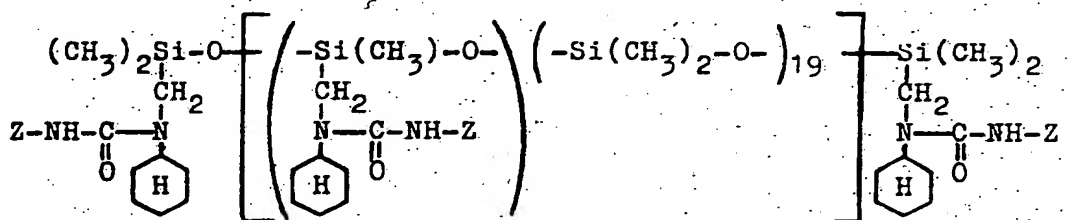
Von einem wasserfreien Polyalkylenglykolmonobutyläther, der in bekannter Weise durch Oxalkylierung von je 1 Mol n-Butanol zuerst mit 17 Mol Äthylenoxyd und weiterhin mit 13 Mol Propylenoxyd hergestellt ist und dessen Molgewicht im Mittel 1550 beträgt, mischt man 3000 g bei 20 bis 25°C mit 1680 g (10 Mol) Hexamethyldiisocyanat und erhitzt das Gemisch 20 Stunden lang auf 90°C. Dann befreit man das Reaktionsprodukt von dem überschüssigen Hexamethyldiisocyanat durch nötigenfalls wiederholte Dünnschichtdestillation bei 0,1 bis 0,2 Torr und 150°C. Als blaßgelben öligen Rückstand erhält man ohne nennenswerten Ausbeuteverlust einen isocyanatmodifizierten Carbamidsäureester der im Beispiel angegebenen Formel. Sein Gehalt an OCN-Gruppen beträgt 2,55 Gewichtsprozent, sein Molgewicht im Mittel demnach 1585 g.

Beispiel 4

Analog, wie in Beispiel 3 beschrieben, läßt man 68,9 g (0,1 Grammäquivalent) eines aminoalkylsubstituierten Polysiloxans der Formel



mit 158,5 g (0,1 Mol) des im Beispiel 3 verwendeten isocyanat-modifizierten Carbamidsäureesters reagieren. Der schließlich nach Abdestillieren des Lösungsmittels verbleibende hochviskose Rückstand ist ebenfalls in kaltem Wasser gut löslich; seine Zusammensetzung entspricht im wesentlichen der Formel

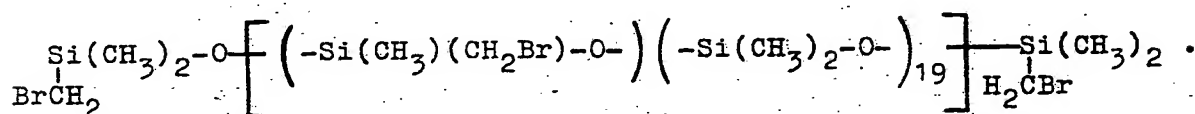


worin -Z den Rest  $-(\text{CH}_2)_6-\text{NH}-\text{C}(=\text{O})-\text{O}-(\text{C}_3\text{H}_6-\text{O})_{13}-(\text{C}_2\text{H}_4-\text{O})_{17}-\text{C}_4\text{H}_9$  bedeutet.

Das in diesem Beispiel zu verwendende aminoalkylsubstituierte Polysiloxan läßt sich analog dem im Anschluß an Beispiel 3 beschriebenen Verfahren folgendermaßen herstellen:

Ein Gemisch von 1960 g (15,2 Mol) Dimethyldichlorsilan, 166,5 g (0,8 Mol) Methyl-(brommethyl)-dichlorsilan und 300 g (1,6 Mol) Dimethyl-(brommethyl)-chlorsilan läßt man zur Hydrolyse und Siloxankondensation im Laufe einer Stunde in 4 Liter Wasser tropfen, trennt die dabei gebildete Polysiloxanphase nach

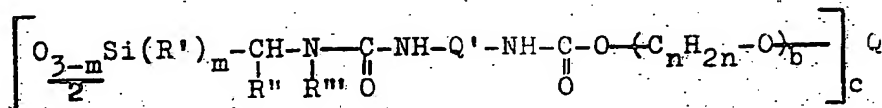
Erkalten ab und vermischt sie dann mit 40 g Wasserstoffmontmorillonit als Äquilibrierungskatalysator. Dieses Gemisch erhitzt man unter einem mit Wasserabscheider versehenen Rückflußkühler auf 150°C und rührt es bei dieser Temperatur unter gleichzeitigem Einleiten von Stickstoff so lange, bis in dem Abscheider kein Wasser mehr kondensiert. Danach setzt man das Erhitzen bei 150°C noch 5 Stunden lang fort; nach Erkalten des Reaktionsgemisches filtriert man es. Als Filtrat erhält man ein 12,5 Gewichtsprozent Brom in BrCH<sub>2</sub>-Gruppen enthaltendes Polysiloxan der Formel



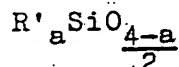
1134 g davon, 1,77 Grammatom Br enthaltend, mischt man mit 990 g (10 Mol) Cyclohexylamin und verfährt im übrigen, wie zuvor beschrieben. Das nach der letzten Filtration gewonnene Polysiloxan enthält neben 0,1 Gewichtsprozent tertiär gebundenen Stickstoffs 2,03 Gewichtsprozent Stickstoff in seinen Si-gebundenen sekundären Cyclohexylaminomethylgruppen; seine Zusammensetzung entspricht im Mittel der am Anfang des Beispiels angegebenen Formel.

Patentansprüche

1. Siloxanmodifizierte Harnstoffderivate, bestehend aus mindestens einer Struktureinheit der Formel



und weiteren Struktureinheiten, deren jede für sich entweder der vorgenannten Formel oder bis zu weniger als deren tausendfacher Anzahl der Formel



entspricht, worin

R' ein gegebenenfalls halogen- oder cyansubstituierter Alkyl-, Cycloalkyl- oder Arylrest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen,

R'' ein Wasserstoffatom oder ein Methyl- oder Phenylrest,

R''' ein Wasserstoffatom oder ein gegebenenfalls halogen- oder cyansubstituierter Alkyl-, Cycloalkyl- oder Arylrest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen,

Q' ein Alkylenrest mit 2 bis 10 Kohlenstoffatomen, ein Cycloalkylen-, Arylalkylen-, Arylen- oder Alkylarylenrest mit bis zu 10 Kohlenstoffatomen oder ein vom Diphenylmethan durch Entzug von zwei Wasserstoffatomen abgeleiteter Arylenrest,

Q ein ein- bis sechswertiger gesättigter aliphatischer Kohlenwasserstoffrest mit bis zu 6 Kohlenstoffatomen,

m = 0, 1 oder 2,

n = 2, 3 oder 4,

a = 0, 1, 2 oder 3,

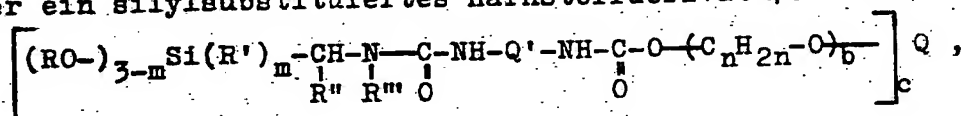
b = null oder eine der ganzen Zahlen von 1 bis 200,

c = Wertigkeitszahl von Q ist,

wobei diese Reste und Zahlenwerte an jeder Stelle einer Molekel unabhängig voneinander gewählt sind.

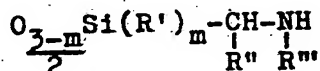
009832/1899

2. Verfahren zur Herstellung von siloxanmodifizierten Harnstoffderivaten nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man entweder ein silylsubstituiertes Harnstoffderivat der Formel

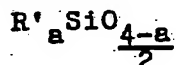


worin R ein Alkyl- oder Cycloalkylrest mit bis zu 6 Kohlenstoffatomen oder ein Phenylrest ist, oder ein Gemisch solcher Verbindungen oder ein Gemisch dieser Verbindungen mit solchen der Formel  $\text{R}'_a \text{Si}(\text{-OR})_{4-a}$  bei einer Temperatur zwischen 20 und 100°C mit mindestens einem halben Mol Wasser je Gramm-Äquivalent der RO-Reste reagieren läßt

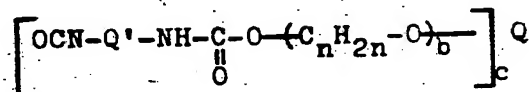
oder ein aminoalkylsubstituiertes Polysiloxan, bestehend aus mindestens einer Struktureinheit der Formel



und weiteren Struktureinheiten, deren jede für sich entweder auch dieser Formel oder der Formel



entspricht, mit einem isocyanatmodifizierten Carbamidsäureester der Formel



bei einer Temperatur zwischen -20 und 150°C, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umgesetzt.